

## ЗАПАСЕННАЯ ЭНЕРГИЯ В МОНОКРИСТАЛЛАХ ХЛОРИСТОГО НАТРИЯ ПОСЛЕ ОБЛУЧЕНИЯ ПРОТОНАМИ

А. А. ВОРОБЬЕВ, Е. К. ЗАВАДОВСКАЯ, А. В. КУЗЬМИНА  
Е. М. ГОЛОВЧАНСКИЙ

(Представлена семинаром лаборатории энергетике и электроники ионных структур  
НИИ ФТТ)

При взаимодействии излучений с твердыми телами в последних образуются дефекты кристаллической структуры. Это влечет за собой изменение определенных физических свойств твердых тел и повышение их свободной энергии. Приращение свободной энергии определяет величину запасенной энергии. Запасенная энергия охватывает все дефекты кристаллической решетки и дает меру общего нарушения твердого тела.

Твердые тела представляют собой сложные соединения веществ с различным типом химической связи. Для установления закономерности влияния облучения на сложные структуры изучение необходимо начинать с простейших модельных кристаллических тел, какими являются монокристаллы щелочногалоидных солей.

В данной работе исследовались монокристаллы хлористого натрия. В работах [1, 2] было показано, что запасенная энергия в NaCl при одинаковых условиях протонного и гамма-облучения значительно больше, чем в таких щелочногалоидных кристаллах, как KCl, KBr и KJ. Это дает возможность более детально изучать в кристаллах NaCl запасенную энергию.

Запасенная энергия в монокристаллах NaCl исследовалась впервые после облучения протонами с энергией 350 Мэв [2]. Кинетика накопления запасенной энергии изучалась после гамма-облучения [3] и рентгеновского облучения [4]. В поликристаллах NaCl запасенная энергия была измерена после реакторного облучения [5]. По результатам этих работ можно судить о влиянии различных видов облучения на величину запасенной энергии в NaCl.

Целью данной работы было изучение закономерностей влияния экспозиционной дозы (поглощенной энергии), интенсивности протонного облучения, чистоты кристалла, его дефектности на величину и характер накопления запасенной энергии в NaCl.

Облучение монокристаллов NaCl проводилось на циклотроне Томского политехнического института протонами с энергией 4,5 Мэв через тонкий (7 мк) слой фольги, предохраняющей образцы от высвечивания в процессе облучения. Исследовался интервал доз облучения от  $4,5 \cdot 10^{13}$  протон/см<sup>2</sup> до  $1,35 \cdot 10^{16}$  протон/см<sup>2</sup>. Интенсивность облучения изменялась в 7 раз от  $1,5 \cdot 10^{11}$  протон/см<sup>2</sup>·сек до  $9,5 \cdot 10^{11}$  протон/см<sup>2</sup>·сек.



Для измерения запасенной энергии применялся метод растворения. Два образца (облученный и эталонный) одновременно растворялись в двух гнездах микрокалориметра [6]. По разности теплот растворения оценивалась величина запасенной энергии. Опыты показали, что в облученных кристаллах теплота растворения меньше, чем в необлученных, т. е. энергия, затрачиваемая на разрушение кристаллов путем их растворения, уменьшается после облучения.

На рис. 1 показано изменение запасенной энергии в зависимости от поглощенной энергии в кристаллах NaCl после облучения протонами с различной интенсивностью. Как видно из этого графика, величина

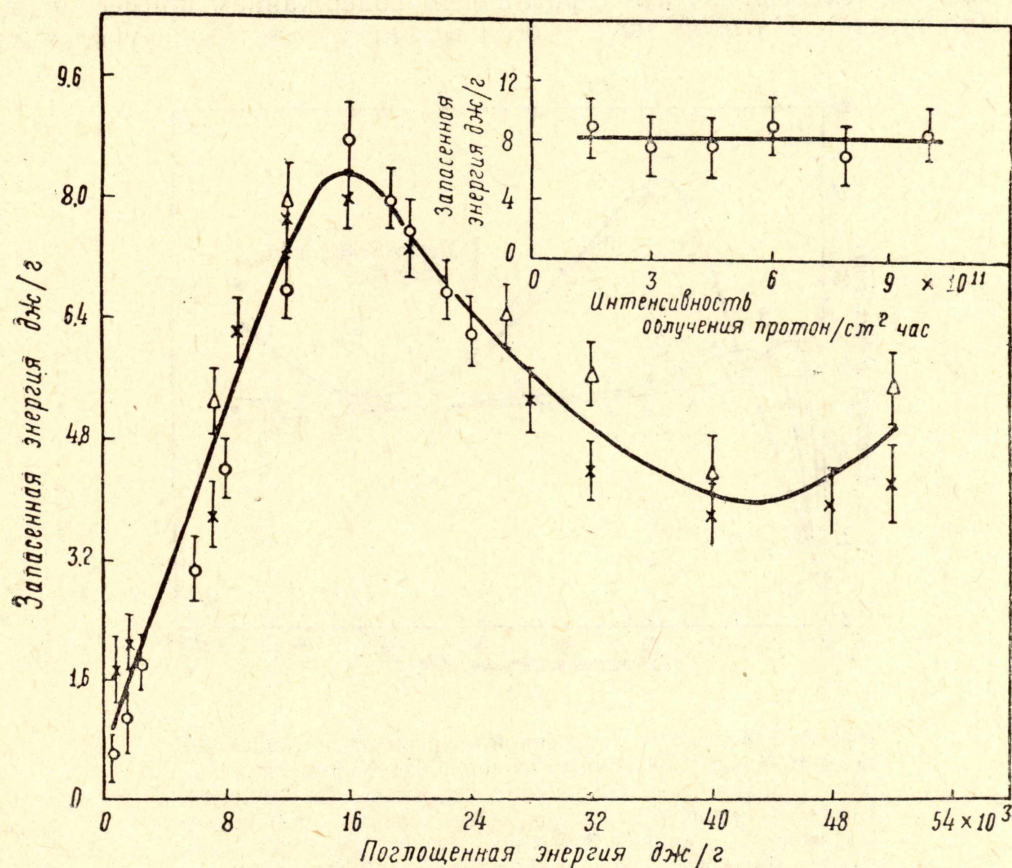


Рис. 1. Изменение запасенной энергии в зависимости от поглощенной дозы в кристаллах NaCl, облученных пучком протонов различной интенсивности:

—○—○—○—○—○—○— интенсивность  $1,5 \cdot 10^{11}$  протон/см<sup>2</sup>,  
 —△—△—△—△—△—△— интенсивность  $3,0 \cdot 10^{11}$  протон/см<sup>2</sup>,  
 —×—×—×—×—×—×— интенсивность  $4,5 \cdot 10^{11}$  протон/см<sup>2</sup>.

запасенной энергии сложным образом зависит от поглощенной энергии и не зависит от интенсивности облучения. При всех исследуемых значениях интенсивности облучения наблюдаются характерные особенности в накоплении энергии: а) скорость на начальном, линейном, этапе накопления не зависит от интенсивности облучения; б) при всех интенсивностях облучения появляется максимум при одинаковой поглощенной энергии; в) величина максимума не зависит от интенсивности облучения; г) минимальное значение запасенной энергии наблюдается при одинаковой поглощенной энергии; д) после понижения запасенной энергии вновь наблюдается тенденция к росту ее величины, которая



наиболее четко проявляется при интенсивности, равной  $4,5 \cdot 10^{11}$  протон/см<sup>2</sup>·сек.

Ранее нами было подтверждено экспериментально предположение, что основной вклад в запасенную энергию при определенных условиях облучения NaCl вносят *F*-центры [4]. Известно, что скорость накопления *F*-центров в щелочногалоидных кристаллах увеличивается при введении в них двухвалентных катионозамещающих примесей. В данной работе нами исследовалось влияние примеси кальция на запасенную энергию в NaCl.

На рис. 2 приведена зависимость величины запасенной энергии от поглощенной энергии в NaCl с различным содержанием примеси кальция (по шихте). На этой зависимости можно отметить следующие за-

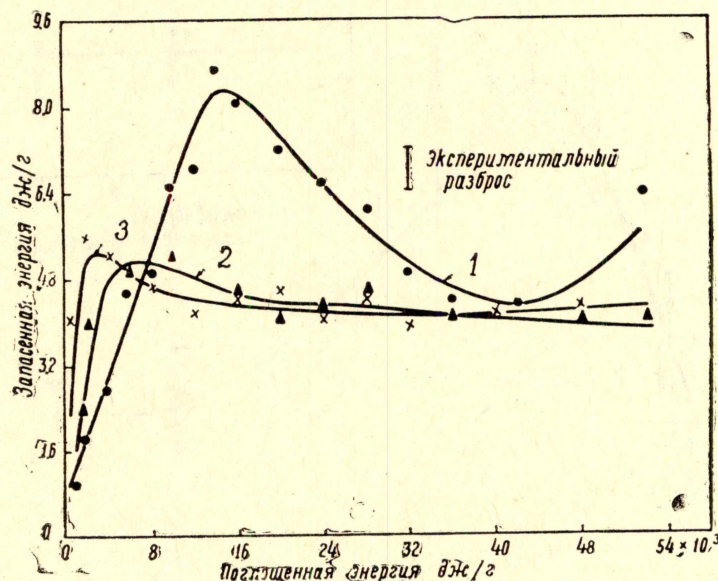


Рис. 2. Зависимость запасенной энергии от поглощенной дозы в NaCl с различным содержанием примеси кальция: кривая 1 — содержание кальция (по шихте) 1 моль %, кривая 2 — содержание кальция (по шихте) 0,1 моль %, кривая 3 — относительно «чистый» кристалл (возможное содержание кальция 0,001 моль % ~ 0,005 моль %)

кономерности: а) запасенная энергия в кристаллах NaCl, содержащих примесь кальция, значительно меньше, чем в «чистых» кристаллах (под «чистыми» кристаллами мы имеем в виду такие, в которых содержание кальция не выше 0,01 мол %); б) скорость накопления запасенной энергии при небольших поглощенных энергиях увеличивается с увеличением содержания примеси; в) в примесных кристаллах максимум в кинетике накопления запасенной энергии значительно меньше и сдвинут в область меньших поглощенных энергий; г) при поглощенной энергии, приблизительно равной  $16 \times 10^3 \frac{\text{Дж}}{\text{г}}$  наблюдается насыщение запасенной энергии.

В работе исследовалась кинетика накопления запасенной энергии в монокристаллах NaCl различного происхождения, а именно: в монокристаллах, выращенных из расплава по методу Киропулоса и в каменной соли. Полученные результаты приведены на рис. 3. Как видно, в монокристаллах NaCl различного происхождения при одинаковых



условиях облучения (интенсивность облучения  $1,5 \cdot 10^{11}$  протон/см<sup>2</sup>·сек) и величина запасенной энергии, и характер ее накопления сильно различаются.

Из рассмотрения полученных зависимостей (рис. 2, 3) можно сделать вывод, что на величину запасенной энергии сильное влияние оказывает примесь и ее распределение в кристалле. Известно, что в каменной соли примесь не входит в решетку, а располагается на дефектных местах кристаллической решетки, блоках мозаики, дислокациях. При таком ее распределении она, возможно, не принимает участия в генерации дефектов. Дефекты генерируются в самой решетке кристалла, например, по механизму Варли, и накопление дефектов происходит медленнее, чем в примесном кристалле, и не достигает той критической концентрации, при которой начинается процесс коагуляции. Поэтому в кинетике накопления запасенной энергии в каменной соли отсутствует максимум. В примесных кристаллах примесь оказывает влияние как на величину, так и на положение максимума.

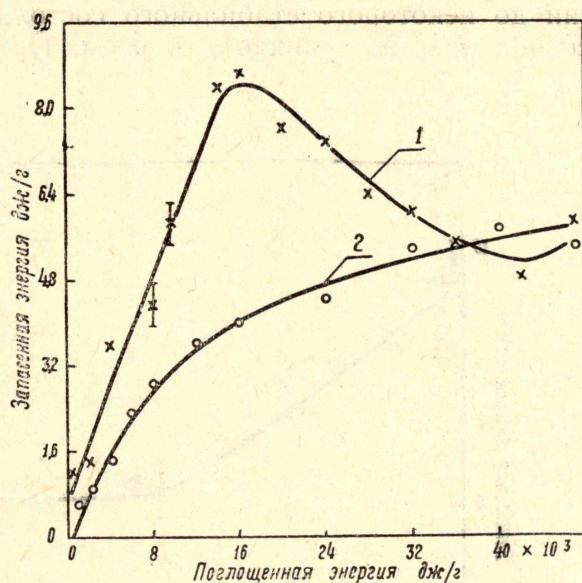


Рис. 3. Накопление запасенной энергии в монокристаллах NaCl, выращенных из расплава и в каменной соли, в зависимости от поглощенной энергии: кривая 1 — NaCl выращен из расплава, кривая 2 — каменная соль

Следовательно, можно предположить, что максимум в кинетике накопления запасенной энергии связан с примесью, находящейся в решетке. Вернее, примесь дает дополнительный источник генерации дефектов. Поэтому критическая концентрация их достигается быстрее.

После достижения критической концентрации начинается процесс коагуляции дефектов и, возможно, процесс их взаимного уничтожения под влиянием самого облучения. Критическая концентрация достигается при одной и той же поглощенной дозе. Этот процесс и объясняет наличие максимума на кинетике накопления запасенной энергии. Возникает тогда вопрос, почему в примесных кристаллах скорость накопления выше при малых поглощенных дозах, запасенная энергия не достигает величины такой же, как в «чистых» кристаллах.

В работе [7] показано, что процесс образования сложных дефектов при протонном облучении определяется кратностью локализации дефектов. Примесь в кристалле распределяется неравномерно и с высокой локальной концентрацией. Поэтому в примесных кристаллах локальная концентрация дефектов будет выше, и раньше должен начаться процесс коагуляции и взаимного уничтожения дефектов, из-за чего максимум на кинетике накопления появляется раньше, а затем наступает насыщение, так как процесс превращения  $F \rightleftharpoons M$  в примесных кристаллах подавлен [8].

В данной работе исследовалась также устойчивость запасенной



энергии в NaCl. На рис. 4 показана зависимость запасенной энергии от времени хранения этих кристаллов в темноте при комнатной температуре. В течение первой недели хранения запасенная энергия изменяется незначительно. Затем происходит ее постепенное уменьшение до стабильной величины  $\sim 4$  дж/г. Изменение запасенной энергии со временем хранения также свидетельствует о наличии в кристаллах некоторой неравновесной концентрации дефектов. В случае зависимостей, показанных на рис. 1, 2, само облучение вызывает спад запасенной энергии до некоторого стабильного состояния, которому соответствует запасенная энергия, равная  $\sim 4$  дж/г. При хранении облученных об-

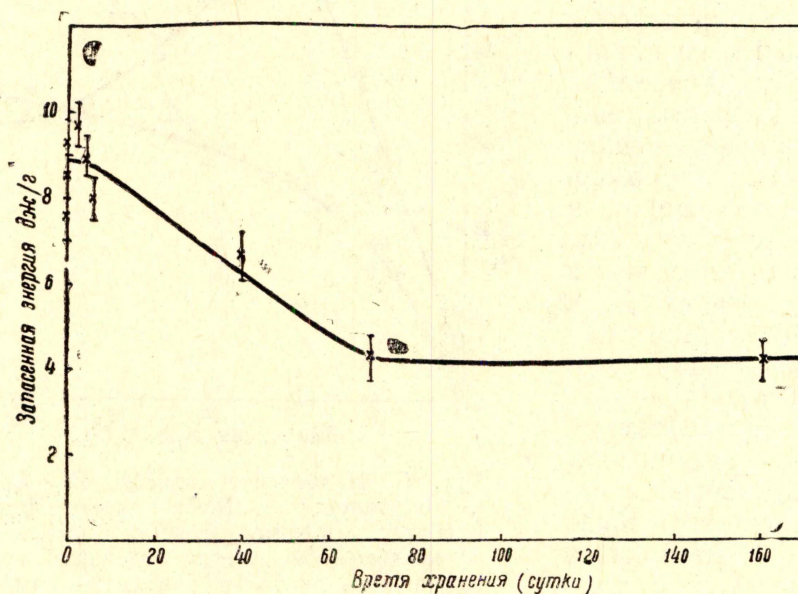


Рис. 4. Изменение запасенной энергии в NaCl со временем хранения в темноте

разцов в них происходят, возможно, те же процессы, которые приводят к образованию более устойчивого состояния дефектов, которому также соответствует величина запасенной энергии, равная 4 дж/г.

### Выводы

Таким образом, в результате исследования накопления запасенной энергии после облучения протонами монокристаллов NaCl можно сделать следующие выводы:

1. Накопление запасенной энергии имеет сложный характер, определяемый наличием и распределением примеси кальция в кристалле.
2. Наличие примеси кальция увеличивает скорость накопления энергии на начальном этапе облучения, но снижает величину при больших дозах облучения.
3. Запасенная энергия определяется поглощенной дозой и не зависит от интенсивности протонного облучения.
4. Изменение запасенной энергии при хранении облученных кристаллов происходит в две стадии.



## ЛИТЕРАТУРА

1. А. В. Кузьмина. Диссертация. г. Томск, 1964.
  2. Kobajashu K., Phys. Rev., 102, 348, 1956.
  3. Е. К. Завадовская, А. В. Кузьмина. Изв. вузов — Физика, 1, 1965.
  4. Phelps E. T., Pearlstein N. F., Phys. Rev. 128, 4, 1962.
  5. Hennen N. A., Z. Angw. Phys., 15, 1, 48, 1963.
  6. Е. К. Завадовская, А. В. Кузьмина, Е. М. Головчанский. Приборы и техника эксперимента, 5, 217, 1966.
  7. Д. И. Вайсбурд. ЖТЭ, хим. 10, 1965.
  8. В. М. Лисицын, И. Я. Мелик-Гайказян. Изв. ТПИ, т. 140, 1966.
-